

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION
EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la Propriété
Intellectuelle
Bureau international



(43) Date de la publication internationale
22 janvier 2004 (22.01.2004)

PCT

(10) Numéro de publication internationale
WO 2004/008160 A1

(51) Classification internationale des brevets⁷ :
G01R 27/02, 31/36

(21) Numéro de la demande internationale :
PCT/FR2003/002219

(22) Date de dépôt international : 11 juillet 2003 (11.07.2003)

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :
02/08897 15 juillet 2002 (15.07.2002) FR

(71) Déposant (pour tous les États désignés sauf US) :
INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE
GRENOBLE [FR/FR]; 46, avenue Félix Viallet, F-38031
Grenoble Cedex 1 (FR).

(72) Inventeurs; et
(75) Inventeurs/Déposants (pour US seulement) : PE-
TRESCU, Bogdan [RO/FR]; 89, rue Saint Laurent,
F-38000 Grenoble (FR). PETIT, Jean-Pierre [FR/FR];
40, rue Saint-Robert, F-38120 Saint-Egrève (FR).
POIGNET, Jean-Claude [FR/FR]; 5, rue des Péralières,
F-38400 Saint Martin d'Hères (FR).

(74) Mandataire : DE BEAUMONT, Michel; Cabinet Michel
de Beaumont, 1, rue Champollion, F-38000 Grenoble (FR).

(81) État désigné (national) : US.

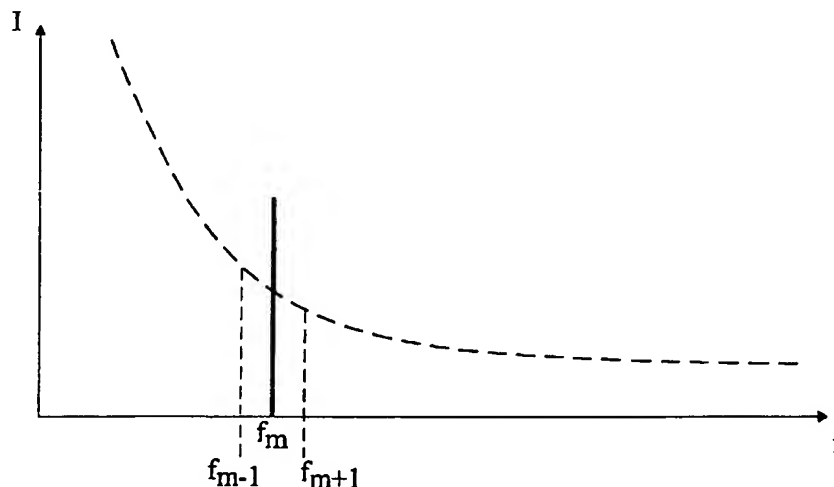
(84) États désignés (régional) : brevet européen (AT, BE, BG,
CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE,
IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

Publiée :
— avec rapport de recherche internationale

[Suite sur la page suivante]

(54) Title: METHOD OF DETERMINING THE IMPEDANCE OF AN ELECTROCHEMICAL SYSTEM

(54) Titre : PROCÉDE DE DETERMINATION DE L'IMPEDANCE D'UN SYSTEME ELECTROCHIMIQUE



(57) Abstract: The invention relates to a method of determining the complex impedance $Z(f_m)$ of a non-steady electrochemical system, comprising the following steps consisting in: bringing the system to a selected voltage condition and applying a sinusoidal signal with frequency f_m thereto; immediately thereafter, measuring successive values for voltage and current at regular time intervals T ; calculating the discrete Fourier transforms for voltage ($E(f)$) and current ($I(f)$), the voltage transform being calculated for the single frequency f_m of the sinusoidal signal and the current transform being calculated for frequency f_m and for two adjacent frequencies f_{m-1} and f_{m+1} on either side of frequency f_m ; and calculating the impedance using the following formula: $Z(f_m) = E(f_m)/I^*(f_m)$, wherein I^* denotes a corrected current such that $\text{Re}[I^*(f_m)] = \{\text{Re}[I(f_m)] - \{\text{Re}[I(f_{m+1})] + \text{Re}[I(f_{m-1})]\}/2\}$, $\text{Im}[I^*(f_m)] = \text{Im}[I(f_m)] - \{\text{Im}[I(f_{m+1})] + \text{Im}[I(f_{m-1})]\}/2$.

[Suite sur la page suivante]

WO 2004/008160 A1



— avant l'expiration du délai prévu pour la modification des revendications, sera republiée si des modifications sont reçues

En ce qui concerne les codes à deux lettres et autres abréviations, se référer aux "Notes explicatives relatives aux codes et abréviations" figurant au début de chaque numéro ordinaire de la Gazette du PCT.

(57) **Abrégé :** L'invention concerne un procédé de détermination de l'impédance complexe $Z(f_m)$ d'un système électrochimique non stationnaire, comprenant les étapes suivantes: mettre le système dans un état de tension choisi et lui appliquer un signal sinusoïdal de fréquence f_m , mesurer immédiatement après des valeurs successives de la tension et du courant à des intervalles de temps réguliers ΔT , calculer les transformées de Fourier discrètes de la tension ($E(f)$) et du courant ($I(f)$), la transformée de la tension étant calculée pour la seule fréquence f_m du signal sinusoïdal et la transformée du courant étant calculée pour la fréquence f_m et pour deux fréquences adjacentes f_{m-1} et f_{m+1} de part et d'autre de la fréquence f_m , et calculer l'impédance selon la formule suivante: $Z(f_m) = E(f_m)/I^*(f_m)$ où I^* désigne un courant corrigé tel que: $\text{Re}[I^*(f_m)] = \text{Re}[I(f_m)] - \{\text{Re}[I(f_{m+1})] + \text{Re}[I(f_{m-1})]\}/2$, $\text{Im}[I^*(f_m)] = \text{Im}[I(f_m)] - \{\text{Im}[I(f_{m+1})] + \text{Im}[I(f_{m-1})]\}/2$.

**PROCÉDÉ DE DÉTERMINATION DE L'IMPÉDANCE D'UN SYSTÈME
ÉLECTROCHIMIQUE**

Pour la détermination des propriétés et des qualités d'un système électrochimique (tel qu'une pile, une batterie, un système de dépôt électrolytique, un système d'analyse d'un milieu) et la prévision de son fonctionnement futur, l'un des
5 paramètres dont la connaissance est essentielle est l'impédance de ce système.

De façon générale, un système électrochimique comprend, dans un milieu électrolytique, deux électrodes principales - une électrode de travail et une contre-électrode. Une
10 électrode de référence est disposée au voisinage de l'électrode de travail et est utilisée en relation avec celle-ci pour effectuer diverses opérations de mesure ou de régulation. Dans la suite du présent texte les tensions et courants mentionnés correspondent à des mesures effectuées entre une électrode de
15 travail et l'électrode de référence correspondante.

L'impédance d'un système électrochimique correspond au rapport tension sur courant. Il est connu que pour mesurer rapidement la valeur de cette impédance en fonction de la fréquence, il est souhaitable de calculer le rapport des transformées de
20 Fourier discrètes (DFT) de la tension et du courant. Pour cela, on applique entre une électrode de référence et une électrode de

travail d'une cellule électrochimique un signal d'excitation de faible amplitude et on mesure à des intervalles de temps égaux ΔT , N valeurs successives $e(n)$ et $i(n)$ de la tension et du courant, avec $1 \leq n \leq N$. L'expression générale des transformées de Fourier discrètes $E(f_m)$ et $I(f_m)$ de la tension et du courant
 5 de Fourier discrètes $E(f_m)$ et $I(f_m)$ de la tension et du courant pour une séquence de N points est :

$$E(f_m) = \Delta T \sum_{n=1}^N e(n) \exp(-2\pi j f_m n \Delta T) \quad (1)$$

$$I(f_m) = \Delta T \sum_{n=1}^N i(n) \exp(-2\pi j f_m n \Delta T) \quad (2)$$

où j désigne le nombre complexe dont le carré est -1 , N le
 10 nombre de points de mesure, ΔT l'intervalle d'échantillonnage. Le calcul de transformée de Fourier discrète peut être effectué pour $N/2$ valeurs de fréquence f_m , avec $0 \leq m < (N/2)-1$, N étant un nombre pair. Ces $N/2$ fréquences discrètes sont régulièrement réparties entre 0 et $1/2\Delta T$ ($0 \dots 1/m\Delta T \dots 1/2\Delta T$).

15 L'impédance complexe pour une fréquence f_m donnée est alors égale à :

$$Z(f_m) = E(f_m) / I(f_m). \quad (3)$$

Les méthodes de mesure d'impédance utilisées dans la pratique, diffèrent principalement par le type de signal d'excitation du système : sinusoïdal, multi-sinusoïdal, bruit blanc,
 20 etc. Une excitation sinusoïdale est de loin le procédé le plus utilisé car il s'avère être le plus précis. Le procédé consiste à imposer une régulation sinusoïdale à la cellule électrochimique avec un signal de petite amplitude et à enregistrer la
 25 réponse de la cellule en courant et en tension. Le rapport des transformées de Fourier de la tension et du courant à la fréquence du sinus donnera la valeur de l'impédance à cette fréquence. Le spectre des fréquences est balayé en modifiant la fréquence d'excitation.

30 Dans la théorie des systèmes électriques, l'expression de l'impédance (équation (3)) est correcte à condition que le système analysé soit linéaire et stationnaire et que des perturbations ne soient pas apportées par des phénomènes extérieurs au

système. Dans le cas des systèmes électrochimiques, le respect de ces conditions impose des précautions particulières. La fonction de transfert d'un système électrochimique est généralement non linéaire mais on peut la considérer comme linéaire sur une petite portion. C'est pour cela qu'on utilise un signal d'excitation de faible amplitude. En conséquence, le rapport signal/bruit diminue et on doit augmenter le temps de mesure, c'est-à-dire le nombre de points de mesure pour éliminer le bruit par une intégration de la réponse. En revanche, l'allongement du temps de mesure pose des problèmes quand à la stationnarité du système électrochimique. Dans beaucoup de cas réels, la condition de stationnarité ne peut pas être remplie. Les causes sont multiples : relaxation du potentiel, relaxation du courant, relaxation des concentrations. Dans ces conditions, si le temps de mesure est suffisamment long pour que l'on ait un bon rapport signal/bruit, le système n'est pas stationnaire pendant la durée de mesure et l'impédance calculée n'a plus grande signification, notamment aux basses fréquences (par exemple inférieures au hertz) où les problèmes de non-stationnarité sont particulièrement aigus.

Divers procédés ont été proposés pour résoudre ce problème de non stationnarité des systèmes électrochimiques, mais aucun n'a donné de solution satisfaisante.

Ainsi, un objet de la présente invention est de prévoir un nouveau procédé de calcul de l'impédance d'un système électrochimique permettant de s'abstraire des erreurs liées à la non stationnarité du système.

Pour atteindre cet objet, la présente invention prévoit un procédé de détermination de l'impédance complexe $Z(f_m)$ d'un système électrochimique non stationnaire, comprenant les étapes suivantes :

mettre le système dans un état de tension choisi et lui appliquer un signal sinusoïdal de fréquence f_m ,

mesurer immédiatement après des valeurs successives de la tension et du courant à des intervalles de temps réguliers ΔT ,

calculer les transformées de Fourier discrètes de la tension ($E(f)$) et du courant ($I(f)$), la transformée de la tension étant calculée pour la seule fréquence f_m du signal sinusoïdal et la transformée du courant étant calculée pour la fréquence f_m et pour deux fréquences adjacentes f_{m-1} et f_{m+1} de part et d'autre de la fréquence f_m , et

calculer l'impédance selon la formule suivante :

$$Z(f_m) = E(f_m) / I^*(f_m)$$

où I^* désigne un courant corrigé tel que :

$$\text{Re}[I^*(f_m)] = \text{Re}[I(f_m)] - \{\text{Re}[I(f_{m+1})] + \text{Re}[I(f_{m-1})]\} / 2$$

$$\text{Im}[I^*(f_m)] = \text{Im}[I(f_m)] - \{\text{Im}[I(f_{m+1})] + \text{Im}[I(f_{m-1})]\} / 2.$$

Un mode de réalisation particulier de la présente invention sera exposé à titre non-limitatif en relation avec la figure jointe qui représente le spectre d'amplitude en fonction de la fréquence d'un système électrochimique soumis à une excitation sinusoïdale de faible amplitude et à un échelon de tension.

Tout d'abord, on notera que, comme le potentiel appliqué est imposé par l'instrument d'analyse, la non stationnarité du système ne peut se manifester que par des fluctuations de courant.

La présente invention se base sur l'analyse du comportement d'un système électrochimique soumis à un échelon de tension. La DFT de la réponse en courant traduit pour l'essentiel des phénomènes de relaxation et donc l'effet de la non stationnarité du système. Comme le représente la courbe en pointillés sur la figure unique, le spectre en amplitude I du module de la DFT du courant présente habituellement une forte réponse à basse fréquence à des échelons de tension.

Par contre, la réponse à une excitation sinusoïdale de fréquence f_m d'un système stationnaire se traduit par une raie unique à la fréquence f_m . En pratique, cette réponse correspond

d'une part à la réaction du système à l'excitation à la fréquence f_m , d'autre part à la contribution des effets de relaxation.

L'avantage de l'utilisation de la transformée de Fourier est que le spectre monofréquence lié à l'excitation
5 sinusoïdale est superposé au spectre lié à l'échelon de tension.

Selon la présente invention, une fois les considérations ci-dessus prises en compte, on propose de soustraire de la réponse en intensité à la fréquence f_m la contribution due aux
10 relaxations, évaluée à partir de l'analyse de la DFT aux fréquences adjacentes à f_m . En effet, la transformée de Fourier pour des fréquences f_{m-1} et f_{m+1} du système ne correspondra qu'aux phénomènes de non stationnarité et on considérera que la valeur de l'amplitude liée aux non stationnarités pour une
15 fréquence f_m est la moyenne des valeurs pour les deux fréquences adjacentes.

Ainsi, la présente invention propose :

- de placer un système électrochimique dans un état de tension choisi et de lui appliquer une excitation sinusoïdale
20 monofréquence de faible amplitude,

- de mesurer, sans attendre la stabilisation du système, l'amplitude du courant et de la tension à des intervalles de temps réguliers immédiatement après l'application de la tension tandis que l'excitation sinusoïdale est appliquée, et

25 - de calculer d'une part la transformée de Fourier discrète de la tension pour la fréquence f_m de l'excitation et d'autre part la DFT du courant pour la valeur f_m et pour deux valeurs de fréquence f_{m-1} et f_{m+1} adjacentes à la fréquence f_m , et

30 - de calculer la valeur de l'impédance complexe à la fréquence f_m à partir de la valeur de la TFD de la tension pour la fréquence f_m et d'une valeur corrigée de la TFD du courant tenant compte des TFD calculées pour les fréquences f_{m-1} , f_m et f_{m+1} .

On calculera l'amplitude corrigée I^* de la transformée de Fourier discrète du courant en valeur réelle et en valeur imaginaire par les deux équations suivantes :

$$\begin{aligned} \text{Re}[I^*(f_m)] &= \text{Re}[I(f_m)] - \{\text{Re}[I(f_{m+1})] + \text{Re}[I(f_{m-1})]\} / 2 \\ 5 \quad \text{Im}[I^*(f_m)] &= \text{Im}[I(f_m)] - \{\text{Im}[I(f_{m+1})] + \text{Im}[I(f_{m-1})]\} / 2 \end{aligned}$$

La valeur de l'impédance corrigée des effets de non stationnarité est alors :

$$Z(f_m) = E(f_m) / I^*(f_m)$$

avec $I^*(f_m) = \text{Re}[I^*(f_m)] + j\text{Im}[I^*(f_m)]$

10 Dès le relevé des points effectué pour la fréquence f_m , on pourra appliquer un signal sinusoïdal à une nouvelle fréquence et effectuer un nouveau relevé, et ainsi de suite.

Un avantage du présent procédé est qu'il rend possible une analyse correcte d'impédance sur des systèmes électro-
15 chimiques non stationnaires notamment aux très basses fréquences. En même temps, un gain de temps considérable est obtenu pour des systèmes qui se stabilisent lentement car avec la correction selon l'invention, il n'est plus nécessaire d'attendre la stabilisation après une mise sous tension du
20 système pour démarrer une analyse d'impédance.

REVENDICATIONS

1. Procédé de détermination de l'impédance complexe $Z(f_m)$ d'un système électrochimique non stationnaire, caractérisé en ce qu'il comprend les étapes suivantes :

mettre le système dans un état de tension choisi et lui
5 appliquer un signal sinusoïdal de fréquence f_m ,

mesurer immédiatement après des valeurs successives de la tension et du courant à des intervalles de temps réguliers ΔT ,

calculer les transformées de Fourier discrètes de la
10 tension ($E(f)$) et du courant ($I(f)$), la transformée de la tension étant calculée pour la seule fréquence f_m du signal sinusoïdal et la transformée du courant étant calculée pour la fréquence f_m et pour deux fréquences adjacentes f_{m-1} et f_{m+1} de part et d'autre de la fréquence f_m , et

15 calculer l'impédance selon la formule suivante :

$$Z(f_m) = E(f_m) / I^*(f_m)$$

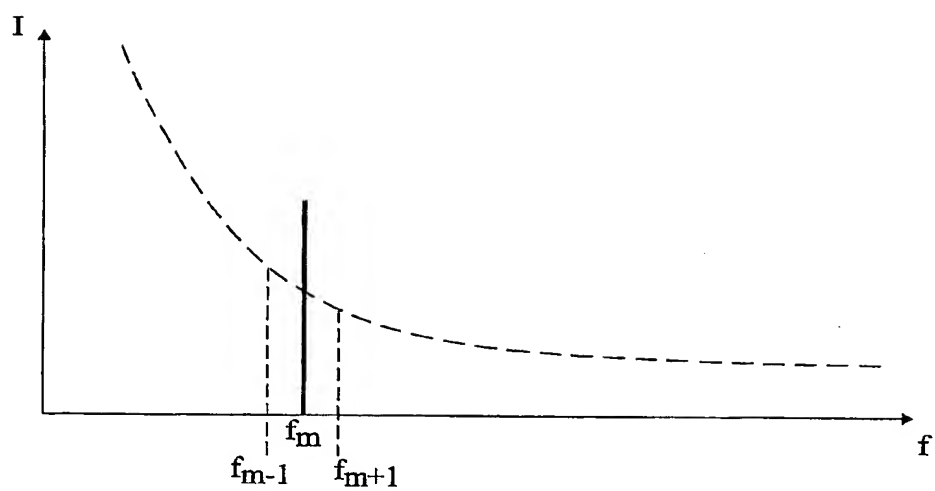
où I^* désigne un courant corrigé tel que :

$$\text{Re}[I^*(f_m)] = \text{Re}[I(f_m)] - \{\text{Re}[I(f_{m+1})] + \text{Re}[I(f_{m-1})]\} / 2$$

$$\text{Im}[I^*(f_m)] = \text{Im}[I(f_m)] - \{\text{Im}[I(f_{m+1})] + \text{Im}[I(f_{m-1})]\} / 2.$$

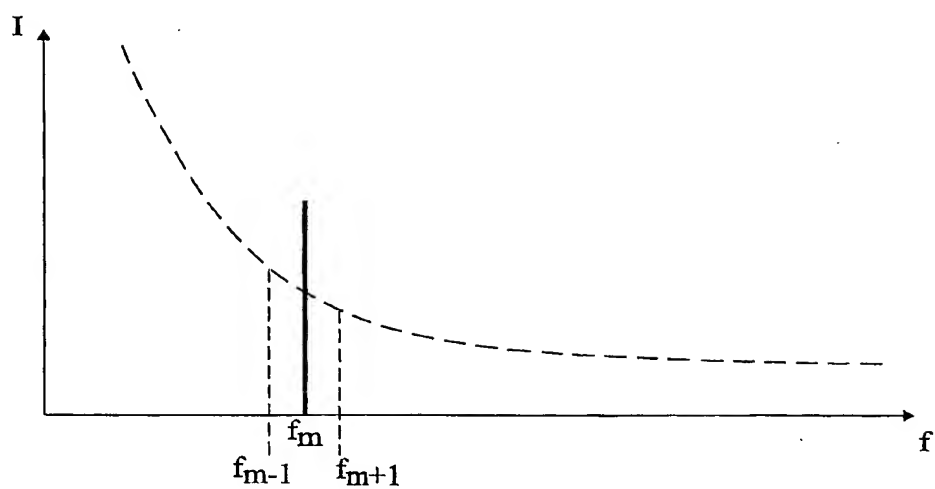
20 2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il est répété pour une succession de fréquences d'excitation.

1/1



Figure

1/1



Figure

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/FR 03/02219

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 G01R27/02 G01R31/36

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 G01R

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6 002 238 A (CHAMPLIN KEITH S) 14 December 1999 (1999-12-14) abstract	1
A	US 5 450 328 A (JANKE DONALD R ET AL) 12 September 1995 (1995-09-12) claim 1	1
A	US 5 465 287 A (EGOZI AVIHAY) 7 November 1995 (1995-11-07) claim 1	1
A	US 6 172 483 B1 (CHAMPLIN KEITH S) 9 January 2001 (2001-01-09) column 2, line 66 -column 10, line 8	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *G* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

14 November 2003

Date of mailing of the international search report

24/11/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vytlačilová, L

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/FR 03/02219

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6002238	A	14-12-1999	AU 6245699 A	03-04-2000
			CN 1325551 T	05-12-2001
			EP 1119882 A1	01-08-2001
			JP 2002525586 T	13-08-2002
			WO 0016428 A1	23-03-2000
			US 6172483 B1	09-01-2001
			US 6262563 B1	17-07-2001
			US 6294896 B1	25-09-2001
US 5450328	A	12-09-1995	EP 0752107 A1	08-01-1997
			WO 9525961 A1	28-09-1995
US 5465287	A	07-11-1995	AU 1564895 A	01-08-1995
			EP 0739565 A1	30-10-1996
			IL 112297 A	04-01-1998
			WO 9519677 A1	20-07-1995
US 6172483	B1	09-01-2001	US 6002238 A	14-12-1999
			AU 1656301 A	12-06-2001
			WO 0140810 A1	07-06-2001
			US 6262563 B1	17-07-2001
			US 6294896 B1	25-09-2001
			AU 6245699 A	03-04-2000
			CN 1325551 T	05-12-2001
			EP 1119882 A1	01-08-2001
			JP 2002525586 T	13-08-2002
			WO 0016428 A1	23-03-2000

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

BEST AVAILABLE COPY

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale No

PCT/FR 03/02219

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE
CIB 7 G01R27/02 G01R31/36

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)
CIB 7 G01R

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)
EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie *	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	US 6 002 238 A (CHAMPLIN KEITH S) 14 décembre 1999 (1999-12-14) abrégé	1
A	US 5 450 328 A (JANKE DONALD R ET AL) 12 septembre 1995 (1995-09-12) revendication 1	1
A	US 5 465 287 A (EGOZI AVIHAY) 7 novembre 1995 (1995-11-07) revendication 1	1
A	US 6 172 483 B1 (CHAMPLIN KEITH S) 9 janvier 2001 (2001-01-09) colonne 2, ligne 66 - colonne 10, ligne 8	1

☐ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

* Catégories spéciales de documents cités:

- *A* document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- *E* document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- *L* document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
- *O* document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- *P* document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

- *T* document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention
- *X* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément
- *Y* document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier
- *Z* document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

14 novembre 2003

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

24/11/2003

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale
Office Européen des Brevets, P.B. 5018 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Vytlačilová, L

BEST AVAILABLE COPY

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale No

PCT/FR 03/02219

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 6002238	A	14-12-1999	AU 6245699 A	03-04-2000
			CN 1325551 T	05-12-2001
			EP 1119882 A1	01-08-2001
			JP 2002525586 T	13-08-2002
			WO 0016428 A1	23-03-2000
			US 6172483 B1	09-01-2001
			US 6262563 B1	17-07-2001
			US 6294896 B1	25-09-2001
US 5450328	A	12-09-1995	EP 0752107 A1	08-01-1997
			WO 9525961 A1	28-09-1995
US 5465287	A	07-11-1995	AU 1564895 A	01-08-1995
			EP 0739565 A1	30-10-1996
			IL 112297 A	04-01-1998
			WO 9519677 A1	20-07-1995
US 6172483	B1	09-01-2001	US 6002238 A	14-12-1999
			AU 1656301 A	12-06-2001
			WO 0140810 A1	07-06-2001
			US 6262563 B1	17-07-2001
			US 6294896 B1	25-09-2001
			AU 6245699 A	03-04-2000
			CN 1325551 T	05-12-2001
			EP 1119882 A1	01-08-2001
			JP 2002525586 T	13-08-2002
			WO 0016428 A1	23-03-2000